

ふりがな	やまぐち たかし
氏名	山口 隆
学位	博士 ( 理学 )
学位記番号	新大院博 (理) 第 234 号
学位授与の日付	平成 17 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
博士論文名	超音波によるカゴ状希土類化合物 $R_3Pd_{20}Ge_6$ の ラットリングとトンネリングの研究

論文審査委員	主査	教授	後藤 輝孝
	副査	教授	合田 正毅
	副査	教授	土屋 良海
	副査	教授	大野 義章
	副査	教授	武田 直也
	副査	助教授	佐々木 進
	副査	助教授	根本 祐一

#### 博士論文の要旨

近年、充填スクッテルダイト化合物やクラスレートといったカゴ状の結晶構造をもつ物質で、カゴに内包された原子のオフセンター振動が報告された。理論的にはオフセンター振動と伝導電子の結合によって、重い電子状態や四極子近藤効果、重い電子超伝導などの重要な物性が出現することが期待され興味を持たれている。

申請者はカゴ状希土類化合物  $R_3Pd_{20}Ge_6$  の純良単結晶育成および超音波実験により、カゴ中での原子のオフセンター振動の研究を行った。その結果、 $R_3Pd_{20}Ge_6$  の弾性定数  $C_{44}$  に超音波吸収を伴う周波数依存性 (超音波分散) を観測した。この超音波分散は熱活性型の緩和時間をもっており、希土類原子のオフセンター振動の状態が熱活性により揺らいでいることを示している。

また、 $La_3Pd_{20}Ge_6$  では 3 K 以下で弾性定数  $C_{44}$  に  $1/T$  に比例したソフト化が観測された。このソフト化はオフセンター振動に伴う局所電荷揺らぎと超音波によって誘起された歪み場が結合することに起因する。 $C_{44}$  にオフセンター振動の応答が現れる事実は三重縮退した  $T_{2g}$  対称性のオフセンターモードが基底となっていることを示している。

本研究におけるカゴ状化合物  $R_3Pd_{20}Ge_6$  において、伝導電子系とカゴ中のオフセンター振動による局所フォノンの結合系が実現している可能性があり、強相関係における新たな課題を提起している。

## 審査結果の要旨

近年、充填スクッテルダイト  $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$  において、Pr 化合物としては初めての重い電子系超伝導が実現していることが見出された。現在、その奇妙な超伝導の起源について盛んに研究が行われている。ここで考えられているのが、Sb のカゴに囲まれた Pr イオンのオフセンター振動による局所的な電荷揺らぎがクーパ一対形成の起源となっている新しいタイプの超伝導機構である。本学位論文ではオフセンター振動と伝導電子の相互作用を研究するため、カゴ状希土類化合物  $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  を取り上げ、超音波実験の結果からオフセンター振動について議論を行っている。

$\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  では弾性定数  $C_{44}$  の 10~30 K 付近に超音波分散が観測された。解析の結果、超音波分散が熱緩和によるものであることから、 $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  ではオフセンターモード間を熱活性によって揺らいでいるラットリング状態が実現していることが明らかになった。ラットリングの特性時間  $\tau_0$  は  $2.0 \times 10^{-12} \sim 3.1 \times 10^{-11}$  s、活性化エネルギーは 70~197 K と見積もられている。価数揺動系における電子の熱活性型の電荷揺らぎは  $\tau_0 \sim 10^{-13}$  s、 $E \sim 1000$  K であるから、電子に比べて非常に大きな質量をもつ原子のオフセンターラットリングでは特性時間が大きく、活性化エネルギーが小さいことは極めて合理的な結果である。 $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  の間での特性時間  $\tau_0$  と活性化エネルギー  $E$  の比較により、 $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  が最も長い特性時間と最も低い活性化エネルギーをもつことが明らかとなった。このことは、オフセンター振動と f 電子との結合によって、ラットリングの振動数の減少 (ソフト化) が起こることを示唆している。この結果は、大野らによる周期的 Holstein-Anderson モデルによる計算結果とコンシステントであり、実験結果を支持している。

本研究では熱活性型のオフセンター振動が極低温でどのような状態になるのかという点に興味をもち、4f 電子のもつ量子自由度の影響を無視できる  $\text{La}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  について極低温の超音波実験を行っている。 $\text{La}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  では 3 K 以下で弾性定数  $C_{44}$  に  $1/T$  に比例したソフト化が観測された。このソフト化は 20mK でも存在しており、ラットリングによる超音波分散が現れる  $C_{44}$  にのみソフト化が観測されることから、三重縮退した  $\Gamma_3$  対称性のオフセンターモードが基底となっていることを示している。本論文では  $\Gamma_3$  対称性の局所電荷揺らぎが格子歪みと結合しソフト化を生じさせると考え、歪み感受率による解析を行っている。その結果、 $\Gamma_3$  オフセンターモード間の結合定数  $\theta = -338.044\text{mK}$  が得られ、負の値を持つことから、オフセンターモード間には反強的な相互作用が働いていることが明らかとなった。

本研究の結果、 $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  において、伝導電子とカゴ中の原子のオフセンター振動による局所フォノンとの結合系が実現していると考えられる。これは強相関係における新たな課題を提起しており、今後、オフセンター振動を踏まえた観点から充填スクッテルダイトなどのカゴ状物質の多様な物理現象を理解することが期待できる。本論文は強相関電子物理に関する重要な結果を有しており、博士 (理学) の博士論文として十分であると認定した。